

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-173855
(43)Date of publication of application : 23.06.2000

(51)Int.Cl. H01G 4/18
C08J 5/18
// C08L 67/02

(21)Application number : 10-351122 (71)Applicant : MITSUBISHI POLYESTER FILM
COPP
(22)Date of filing : 10.12.1998 (72)Inventor : MIHASHI KATSUZO
KUBOTA KOJI

(54) POLYETHYLENE-2, 6-NAPHTHALATE FILM FOR CAPACITOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide capacitor film used inside a car engine room which is enhanced in dielectric breakdown voltage, stabilized in dielectric characteristics, improved in mechanical characteristics, and capable of keeping its mechanical characteristics at high level when it is used in a sever environment.

SOLUTION: A car engine room capacitor film of polyethylene-2, 6- naphthalate has physical properties such as an intrinsic viscosity(IV) 0.56 or above, degree of crystallization 32 to 42%, retention of elongation 50% or above after it is subjected to a deterioration test carried out at 170° C for 3000 hours, and residual elongation 30% or above after the test.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 09.09.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

書誌

(19)【発行国】日本国特許庁(JP)
(12)【公報種別】公開特許公報(A)
(11)【公開番号】特開2000-173855(P2000-173855A)
(43)【公開日】平成12年6月23日(2000. 6. 23)
(54)【発明の名称】コンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルム
(51)【国際特許分類第7版】

H01G 4/18 330

C08J 5/18 CFD
// C08L 67:02

【FI】

H01G 4/18 330 C
330 Z
C08J 5/18 CFD

【審査請求】未請求

【請求項の数】2

【出願形態】OL

【全頁数】7

(21)【出願番号】特願平10-351122

(22)【出願日】平成10年12月10日(1998. 12. 10)

(71)【出願人】

【識別番号】000108856

【氏名又は名称】三菱化学ポリエステルフィルム株式会社

【住所又は居所】東京都港区芝四丁目2番3号

(72)【発明者】

【氏名】三橋 勝三

【住所又は居所】滋賀県坂田郡山東町井之口 347番地 三菱化学ポリエステルフィルム株式会社中央研究所内

(72)【発明者】

【氏名】久保田 弘二

【住所又は居所】滋賀県坂田郡山東町井之口 347番地 三菱化学ポリエステルフィルム株式会社中央研究所内

(74)【代理人】

【識別番号】100103997

【弁理士】

【氏名又は名称】長谷川 曜司

【テーマコード(参考)】

4F071

5E082

【Fターム(参考)】

4F071 AA45 AA88 AA89 AF10 AF21Y AF36 AF45 AF62Y AH12 BA01 BB06 BB08 BC01 BC16
5E082 AB05 BB10 BC19 BC23 EE07 EE24 EE37 FG06 FG35 FG36 GG04 HH25 HH48 JJ04 JJ22 PP04 PP10
要約

(57)【要約】

【課題】厳しい環境下に使用する際、電気絶縁破壊電圧の向上および誘電特性の安定化、機械特性の向上と高いレベルの維持を達成可能な自動車エンジルーム内搭載コンデンサー用フィルムを提供する。

【解決手段】フィルムの極限粘度(IV)が0.56以上、フィルムの結晶化度が32~42%、170°Cで3000時間劣化テストした後のフィルム伸び保持率が50%以上でかつ同テスト後のフィルム残存伸び率が30%以上であることを特徴とする自動車エンジルーム内搭載コンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルム。

請求の範囲**【特許請求の範囲】**

【請求項1】フィルムの極限粘度(IV)が0.56以上、フィルムの結晶化度が32~42%、170°Cで3000時間劣化テストした後のフィルム伸び保持率が50%以上でかつ同テスト後のフィルム残存伸び率が30%以上であることを特徴とする自動車エンジルーム内搭載コンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルム。

【請求項2】フィルムの表面粗さ(SRa)が0.020~0.080μm、150°Cでの縦方向収縮率が1~3%以下、横方向収縮率が2.0%以下であることを特徴とする請求項1記載の自動車エンジルーム内搭載コンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルム。

詳細な説明**【発明の詳細な説明】****【0001】**

【発明の属する技術分野】本発明はコンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルムに関する。さらに詳しくは、本発明は、自動車エンジルーム内で使用可能な耐熱性、耐湿性、電気特性に優れたコンデンサー用ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルムに関する【0002】

【従来の技術】フィルムコンデンサーは、一般に二軸配向ポリエチレンテレフタレートフィルム、二軸配向ポリプロピレンフィルム等のフィルムとアルミニウム薄等の金属薄膜とを重ねあわせて巻回する方法や、あるいは、前記フィルムの表面にアルミニウム、亜鉛等の蒸着膜を形成させた後に巻回または積層する方法により製造されている。最近では、電気あるいは電子回路の小型化の要求に伴い、コンデンサーについても、小型化や実装化が強く推進されている。また、自動車用途においては、使用環境も運転室内での使用環境に限らず、エンジルーム内、すなわち高温高湿度下での使用にまで、範囲が拡大されている。

【0003】従来の一般的な設計では、コンデンサー等の電子部品はエンジンからできるだけ遠い位置に配置していたが、車の軽量化、効率化からエンジン近傍に配置できる耐熱性、耐湿性、振動等に耐える耐久性の優れたフィルムが求められている。ポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルムは、汎用されているポリエチレンテレフタレートフィルムより高いガラス転移温度と高いヤング率を有するため、コンデンサーの使用温度を高温まで広げることが期待される。しかしながら、自動車エンジルーム内の環境に耐え、かつ信頼性のあるコンデンサーを形成するためには、絶縁破壊電圧の優れた誘電率や誘電損失など誘電特性の安定化、かつ、高温、高湿、振動に耐える機械的特性低下が少ないフィルムが強く要求されている。

【0004】耐熱性を解決する目的では、フィルムの極限粘度、フィルムの屈折率を制御する方法が提案されているが、上記の要求を満足するものが現状である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記実情に鑑みなされたものであって、その解決課題は、厳しい環境下に使用する際、電気絶縁破壊電圧の向上および誘電特性の安定化、機械特性の向上と高いレベルの維持を達成可能な自動車エンジルーム内搭載コンデンサー用フィルムを提供することにある。

【0006】

【問題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題に鑑み鋭意検討を重ねた結果、特定のポリエチレンナフタレートフィルムを用いたフィルムコンデンサーによれば、コンデンサーに求められる特性を高度に満足し得ることを知見し、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明の要旨は、フィルムの極限粘度(IV)が0.56以上、フィルムの結晶化度が32~42%、170°Cで3000時間劣化テストした後のフィルム伸び保持率が50%以上でかつ同テスト後のフィルム残存伸び率が30%以上であることを特徴とする自動車エンジンルーム内搭載コンデンサー用ポリエチレン-2,6-ナフタレートフィルムに存する。

【0007】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明で言うコンデンサー用ポリエチレンナフタレートフィルムとは、その主たる構成単位がエチレン-2,6-ナフタレート単位から構成されているフィルムであり、少量、例えば10モル%以下、好ましくは5モル%以下の第三成分によって変性されてもよい。共重合成分量が増加すると、本来ポリエチレン-2,6-ナフタレートフィルムの有している耐熱性、機械特性、高湿下での耐久性が低下する。

【0008】その場合、第三成分としては、例えばアジピン酸、シュウ酸、セバシン酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ナフタレン-2,7-ジカルボン酸、ナフタレン-1,5-ジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸などのカルボン酸成分、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリエチレングリコール等のグリコール成分が挙げられる。

【0009】ポリエチレンナフタレートは、一般にナフタレン-2,6-ジカルボン酸またはその機能的誘導体、例えば、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールとを触媒の存在下、適当な反応条件の下に重縮合させる公知の方法で製造される。コンデンサー作製時の作業性を良好にするため、ポリエチレンナフタレート中に微細な不活性粒子を含有させ、フィルムの滑り性を改善するのが好ましい。

【0010】不活性粒子を含有させる方法としては、析出粒子法および添加粒子法が挙げられる。上記の析出粒子法とは、ポリエステル製造時に反応系内に用損している金属化合物、例えばエステル交換反応後の系内に溶存している金属化合物にリン化合物等を作用させて微細な粒子を析出させる方法であり、この方法は特に粗大粒子が少なく好ましい方法である。また上記の添加粒子法とは、ポリエステル製造工程から製膜前の押し出し行程のいずれかの工程でポリエチレン-2,6-ナフタレート重合体原料に不活性な微粒子を配合させる方法である。

【0011】添加する不活性微粒子の例としては、酸化ケイ素、酸化チタン、ゼオライト、窒化ケイ素、窒化ホウ素、セライト、アルミナ、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、リン酸カルシウム、リン酸リチウム、リン酸マグネシム、フッ化リチウム、酸化アルミニウム、酸化ケイ素、酸化チタン、カオリン、タルク、カーボンブラック、窒化ケイ素、窒化ホウ素およびシリコン粒子、架橋アクリル粒子や架橋ポリスチレン粒子などの有機粒子などの不活性粒子を挙げができる。上記の微粒子の形状は球状、塊状または扁平状のいずれであってもよく、特に制限されない。また配合する微粒子は二種類以上の組み合わせであってもよい。

【0012】使用する粒子の平均径や添加量は、後述するフィルムの表面粗さの観点から選択されるが、好ましくは平均粒子径が0.01~3μmの範囲であり、ポリエチレン-2,6-ナフタレートに対して0.05~1重量%の範囲が好ましい。また粗大粒子は、絶縁欠陥、特にコンデンサー加工時のプレス工程で欠陥原因になりやすく、5μm以上、さらには3μm以上の粗大粒子を含有しないことが好ましい。このため、無機粒子や有機粒子などの不活性粒子はエチレングリコールなどの溶媒中でスラリーとし、サンドグラインダーなどの媒体攪拌型分散装置や超音波分散装置で分散し、その後、湿式分級装置で分級あるいはフィルターで濾過し、粗大粒子を除去するのが好ましい。

【0013】本発明で用いるポリエチレン-2,6-ナフタレートは、重合度が低すぎると、機械特性が低下するだけでなく、耐久性がなく、機械特性劣化が速く、高温時の絶縁破壊電圧初期値が低くなり、高温下での特性低下が速くなる。そのため、フィルムの極限粘度は0.56以上である必要があり、さらには0.60以上、特に0.65以上が好ましい。フィルムの極限粘度が0.56未満では、フィルムコンデンサーの初期絶縁破壊電圧が低いだけでなく、高温下に放置された時のフィルム伸び率低下が大きく、フィルムコンデンサーの絶縁破壊電圧低下および容量のバラツキ、変動が大きくなり、好ましくない。フィルム極限粘度が0.60以上、さらに0.65以上となると、高温下でのフィルムの伸び保持率お

より残存伸び量が大きく、さらに耐久性が良好となる。一方、極限粘度0.70以上では、ポリエチレンナフタレート原料の溶融粘度が高く、押出が難しくなる傾向がある。

【0014】フィルムの極限粘度を高めるため、ポリマーを減圧下または不活性ガス雰囲気下でその融点温度以下の温度で加熱処理や固相重合を行うこともできる。また押出温度は低温で滞留時間を短くし、フィルムの極限粘度を下げないことが望ましい。本発明のフィルムの結晶化度は32～42%の範囲である。フィルム結晶化度が32%未満では、フィルムの寸法安定性が悪く、フィルムコンデンサー作製時に電極処理が不安定になり、電気特性のバラツキが大きくなる。フィルム結晶化度が42%を超えると、コンデンサーにしたときに、高温で長時間放置時の機械的特性変化が大きく、かつ振動による亀裂、高結晶による欠陥の生成によるためか、絶縁破壊電圧低下しやすくなり、好ましくない。【0015】本発明のフィルムの耐熱耐久特性に関し、170°Cで3000時間劣化テスト後のフィルム伸び保持率は50%以上でかつ残存伸び率が30%以上である必要がある。170°Cで3000時間劣化テスト後の伸び保持率が50%未満では、フィルムが高温下に晒された時の劣化速度が速く、残存伸び率が30%未満では、脆くなつてフィルム自体の柔軟性を失い、振動等により亀裂が発生しやすく、コンデンサーでの絶縁破壊電圧低下原因あるいは容量低下原因となる。

【0016】本発明のフィルムの表面粗さ(SRa)は0.020～0.080μmの範囲が好ましい。SRaが0.020μm未満の平坦な場合には、フィルムが平坦すぎて、金属蒸着工程、フィルム巻回工程での作業性、コンデンサー熱処理工程、プレス工程での変形、フィルム間の密着等の不具合が起こる可能性があり、その結果、コンデンサー容量のバラツキが大きくなることがある。一方、SRaが0.080μmを超えると、フィルム上の突起が大きく、コンデンサーに加工した際、フィルム間のずれ、あるいはフィルム層間に空気が介在するために、誘電特性が不安定となり、絶縁破壊電圧が低下することがある。

【0017】本発明のフィルムの150°C～30分の縦方向の収縮率は、通常1.0～3%、同条件の横方向の収縮率は通常0.1～2.0%であり、この条件を満足するフィルムが巻回コンデンサー用フィルムとして好ましい。150°Cでのフィルム縦方向収縮率が1.0%未満では、コンデンサー加工時の締め付け力が弱くなる傾向があり、コンデンサー容量のバラツキや誘電損失の変動が起こることがある。縦方向の収縮率が3%を超えると、コンデンサー断面が不揃いとなる場合がある。一方、横方向の収縮率が0.1%未満や2.0%を超えると、電極端面処理での損失が大きくなる傾向があり、誘電特性の安定したコンデンサーを得ることができなくなる恐れがある。

【0018】本発明のフィルム厚みは自動車用途に使用される定格電圧とコンデンサー容量および小型化、軽量の関係から、好ましくは10μm以下であり、さらに好ましくは5～2μmの範囲である。本発明は、上記の条件、特に本発明の必須要件を満足することによって、170°Cで3000時間劣化テスト後のコンデンサーの絶縁破壊電圧残存率を50%以上、さらには60%以上とすることができる。特に自動車用途のように、振動が激しく、高温下で使用されるものであつて、電気部品の信頼性が要求される用途では、本特性の低下を少なくすることが必要である。

【0019】次に本発明のフィルムを得る方法を以下に具体的に述べるが、以下の例に限定されるものではない。溶融重合または固相重合して得た微細粒子含有ポリエチレン-2,6-ナフタレートを乾燥後280°C～320°Cの範囲の温度で押出機よりシートを冷却固化させ、実質的に無配向の未延伸シートを得る。なお、溶融押出しする際、フィルターで濾過するのが好ましく、必要に応じて多段フィルターを用いることが好ましい。また、冷却固化する際にキャスティングドラムに密着させるため、静電印加キャスト法を適用するのが好ましい。

【0020】得られた未延伸シート状物を、まず縦方向に通常120～170°Cの温度で通常3～6倍、好ましくは3.5～5.0倍延伸する。次いで、一旦ガラス転移温度以下に冷却した後、または冷却することなく、通常120～170°Cで予備加熱した後、ほぼ同程度の温度で3～5倍の倍率で横方向に延伸する。得られた二軸延伸フィルムは、通常180～250°Cの温度範囲で熱固定する。

【0021】なお、第一軸方向の延伸を2段階以上で行えば、良好な厚さ、均一性を達成できるので好ましい。また、横延伸した後さらに長手方向に再延伸する方法も可能であるが、いずれにしても、長手方向の総合延伸倍率を3.5倍以上とすることが好適である。また、前述した特定範囲の収縮特性を得るため、例えばフィルム製造時の熱処理工程で長手方向または横方向に通常1～20%、好ましく2～10%の範囲で弛緩処理を行う。フィルム製造時の熱処理温度を高くする方法を用いても、収縮特性が改善されるが、かかる方法を用いると、ポリエチレンの電気特性が悪化するので、好ましくない。熱処理温度が高すぎると、フィルム密度が高くなりすぎて高度な電気特性が得られない、また、高

温下での機械特性および電気特性の低下が大きく、耐久性に問題を生じる。また、原料乾燥および押出機、フィルター内で、残ポリマーや異物の混入しないような設備、さらに、延伸ロールおよびフィルム搬送ロールにオリゴマー等製膜室の浮遊ゴミが付着しないような設備で製膜することが好ましい。

【0022】このようにして、これまで、知られていたフィルムに比較して、絶縁破壊特性および誘電特性が安定化したポリエチレン-2, 6-ナフタレートフィルムを得ることができ、特に耐熱性に優れた巻回コンデンサー用フィルムとして好適に使用できる。

【0023】

【実施例】以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例によって限定されるものではない。なお、実施例で得られたフィルムの物性値の測定値は下記の方法による。

(1) 極限粘度 $[\eta]$ (dl/g)

ポリマー1gをエノール/テトラクロロエタン=50/50(重量比)の混合溶媒100ml中に溶解させ、30°Cで測定した。

(2) 加熱収縮率(%)

幅30mm、長さ100cmのサイズに切り出したフィルムを所定温度に設定したオープン中で無張力下30分間熱処理した。熱処理前と熱処理後の試料長さを測定して、熱収縮率を下記式で算出した。

【0024】

【数1】

$$\text{熱収縮率} = \frac{\text{熱処理前のサンプル長さ} - \text{熱処理のサンプル長さ}}{\text{熱処理前のサンプル長さ}} \times 100$$

測定はフィルム縦方向と横方向に5点ずつ測定し平均値を求めた。

(3) 結晶化度 n —ヘプタンと四塩化炭素との混合液による密度勾配管法によりフィルムの密度を測定した。なお、測定温度は25°Cで行った。このとき非晶質ポリエチレン-2, 6-ナフタレートおよび完全結晶化ポリエチレン-2, 6-ナフタレートの密度をそれぞれ1.325、1.407として、次式に従い決定した。

【0025】

【数2】

$$\text{結晶化度} = \frac{\rho - 1.325}{1.407 - 1.325}$$

(上記式中、 ρ は求めたフィルムの密度(g/cc))

(4) 残存伸び率の測定試験用オープンはタバイエスペック(株)GPH-102回転枠恒温器の試験片固定枠を取り付け、長さ50mm、巾15mm引張試験片を固定し、170°Cで劣化促進テストを実施した。

【0026】劣化テスト後の残存伸び率は、(株)インテスコ製引張試験機モデル2001型を用いて、温度23°C、湿度50%RHに調整された室内で、200mm/分の速度で引張り、破断時の伸びを読みとり、引張り測定前の長さに対する伸びとして計算した。

(5) 伸び保持率(%)

劣化テスト後の伸び率を用いて下記式で算出した【0027】

【数3】

$$\text{伸び保持率} = \frac{\text{劣化テスト後の伸び率}}{\text{劣化前の伸び率}} \times 100$$

3000時間後の伸び保持率は、3000時間を中心に4点の劣化時間のデータから最小二乗法で求め

た。測定は縦および横より試験片5本を採取し、その平均値とした。

(5) 中心線面平均粗さ(SRa)

表面粗さ測定器は(株)Micromap社製のミクロマップ512を使用し、次のようにして求めた。すなわち、得られたフィルムの粗さ曲面からその中心面上に面積SMの部分を抜き取りこの抜き取り部分の中心面上に直交座標軸、X軸、Y軸を置き中心面に直交する軸をZ軸で表したときに次の式で与えられた値を μm 単位で表す。

【0028】

【数4】

$$S R a = \frac{1}{S M} \frac{L_x}{0} \frac{L_y}{0} \int \int |f(x, Y)| dx dy$$

ただし、 $L_x \times L_y = SM$ 測定面積は $375 \mu\text{m} \times 320 \mu\text{m}$ を15回測定、その平均値とした。

(6) コンデンサー電気特性以下のようにコンデンサーを製造し、誘電損失の変化、静電容量変化を測定した。

(コンデンサの製造) 抵抗加熱型金属蒸着装置を用い、真空室の圧力を 10^{-4} Torr以下として、ロール状のフィルムを巻きだして、そのフィルム表面にアルミニウムを450の厚みに蒸着し、再びロール状に巻き取った。その際、ポリエステルフィルムの長手方向にマージン部を有するストライプ状に蒸着した(蒸着部の幅8mm、マージン部の幅1mmの繰り返し)。

【0029】 上記により得られた蒸着フィルムを左または右に幅0.5mmのマージン部を有する4.5m m幅のテープ状にスリットした。得られた、左マージンおよび右マージンの蒸着ポリエステルフィルム各1枚ずつを併せて巻回し、巻回体を得た。このとき、幅方向に蒸着部分が、0.5mmずつはみ出すように2枚のフィルムをずらして巻回した。この巻回体を温度140°C、圧力 50 kg/cm^2 で5分間プレスした。プレス後の巻回体の両側面にメタリコンを溶射後リード線を付し、液状のビスフェノールA型エポキシ樹脂による含浸層、および粉末状エポキシ樹脂を加熱溶融することによる最低厚さ0.5mmの外装を形成して、フィルムコンデンサとした。

■ 静電容量の変化 得られたコンデンサーの電極間に $60V/\mu\text{m}$ の直流電圧を印加しつつ温度70°C、湿度95%RHの雰囲気下で1000時間放置し、初期静電容量を基準値とする静電容量変化率を求めた。1000時間後の静電容量から初期静電容量を差し引いた値を初期静電容量で除して百分率で表記した。変化量が7%以下を合格とした。

■ コンデンサー絶縁破壊電圧残存率タバイエスペック(株)GPH-102回転枠恒温器の回転枠に上記100ケコンデンサーを入れた金属製のかごを入れ、振動を与えながら、劣化促進テストを実施した。絶縁破壊電圧の測定は各金属製かごより、一定時間ごとサンプリングし両電極間に直流電圧を毎秒100Vの早さでおVから上昇させ絶縁破壊した電圧を測定した。保持率は下記式で算出した。

【0030】

【数5】

$$\text{劣化テスト後絶縁破壊電圧} \\ \text{絶縁破壊電圧残存率 (\%)} = \frac{\text{劣化前の絶縁破壊電圧}}{\text{劣化前の絶縁破壊電圧}} \times 100$$

劣化テスト3000時間後の残存率は、3000時間中に前後4点の残存率を求め最小二乗法で求めた。測定値は試験片100個の平均値を用いた。絶縁破壊電圧残存率が50%以上のものが合格である。

【0031】 実施例1(ポリエチレンナフタレートの製造) まず、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸ジメチル100部、エチレングリコール65部およびエステル交換触媒として酢酸マグネシウム0.09部を使用し、常法に従いエステル交換反応を行った後、エチレングリコールに分散させたサイリシヤ300(平均粒子径1.9 μm)を0.3部添加した。次いで重合触媒として三酸化アンチモン0.04部を添加した後、常法に従って重縮合反応を進め、極限粘度0.55のポリマーを得、次いで窒素気流中で固相重合を行い、最終的に0.63のポリエチレン-2,6-ナフタレートを得た。

(ポリエチレンナフタレートフィルムの製造)まず、上記のポリマを180°Cドライヤーで乾燥後、押出機に投入し、295°Cで溶融混練し、スリット状ダイより40°Cの冷却ロール上にシート状に押し出し、静電印加冷却法を使用して冷却ロールにより急冷して無定形シートを得、次いで、クリーン化された縦延伸機およびテンター内で無定形シートを縦方向に140°Cで4.2倍、横方向に142°Cで4.2倍延伸した。得られたフィルムを230°Cで3秒間熱処理し、厚み3.7μmの二軸配向フィルムを得た。以上のようにして得たフィルムの諸特性およびコンデンサに加工後の電気特性を評価した。得られた結果は下記表1に示すとおり、フィルムの特性は何れも本発明の目的を十分満足し得るものであり、このフィルムを使用して製造したコンデンサは、優れた特性を有していた。

【0032】比較例1実施例1と同じ重縮合反応で得た極限粘度0.57のポリエチレン-2,6-ナフタレート原料を用い、実施例1と同じ条件で延伸し、熱処理温度を210°Cとして3秒間熱処理し、厚み3.7μmの二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性およびコンデンサーに加工後の特性評価を下記表2に示す。

【0033】実施例2, 3, 4, 5, 6実施例1と同じ方法で得た極限粘度0.55のポリエチレン-2,6-ナフタレート原料を、窒素気流中で固相重合を行い、最終ポリマーの極限粘度を0.63(実施例2)、0.68(実施例3)、0.76(実施例4)とした。フィルムの押出温度はスリットダイから流れる樹脂温度を計測、口金温度を310°C(実施例2)、313°C(実施例3)、320°C(実施例4)に調整した。フィルムの熱劣化が少なく、極限粘度が低下しない条件で製膜した。

【0034】実施例5および6については、粒子添加濃度を0.1%(実施例5)、0.8%(実施例6)に変える以外は実施例1と同様にしてフィルムを得た。フィルムの熱処理温度は下記表1に示すが、実施例3および4はテンター内で180°Cで弛緩処理(2%(実施例3)、3%(実施例4))でヨコ収縮率を調整した。

【0035】比較例2～4比較例2～4は実施例1と同じ方法で得られた極限粘度0.63のポリマーを用い、比較例3は極限粘度0.68のポリマーに添加粒子の濃度を1.0%としたもの、同じく、比較例4は添加粒子の濃度を0.5%としたものを用い、下記表2に示す条件で製膜、二軸配向フィルムを得た。得られたフィルムの特性、およびコンデンサーに加工後の電気特性は表2に示すとおりであった。

【0036】以上、得られた結果をまとめて表1および表2に示す。

【0037】

【表1】

表1

	実 施 例					
	1	2	3	4	5	6
縦延伸倍率	4.5	4.5	4.5	4.7	4.5	4.5
横延伸倍率	4.0	4.0	4.0	4.2	4.0	4.0
熱処理温度 (°C)	230	213	245	213	230	230
結晶化度	36	34	40	33	36	36
フィルム極限粘度	0.56	0.56	0.65	0.68	0.56	0.56
熱収縮率(縦)	2.0	2.5	1.7	2.5	2.0	2.0
熱収縮率(横)	0.7	1.5	0.7	0.7	0.7	0.7
SRa (μm)	0.05	0.05	0.05	0.05	0.017	0.09
伸び保持率(%)	55	60	70	75	57	55
残存伸び率(%)	42	48	55	64	43	43
絶縁破壊電圧残存率%	60	55	65	70	57	53
容量変動(%)	-3	-2	-2	-5	-8	-6

【0038】

【表2】

表2

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
縦延伸倍率	4. 5	4. 5	4. 5	4. 5
横延伸倍率	4. 0	4. 0	4. 0	4. 0
熱処理温度 (°C)	210	200	250	250
結晶化度	31	30	43	43
フィルム極限粘度	0. 5	0. 56	0. 65	0. 56
熱収縮率(縦)	4. 1	5. 1	2. 5	0. 5
熱収縮率(横)	2. 3	2. 0	0. 7	-0. 1
SRa (μm)	0. 05	0. 05	0. 09	0.065
伸び保持率(%)	10	65	30	20
残存伸び率(%)	8	56	23	14
絶縁破壊電圧残存率%	35	40	45	40
容量変動(%)	-10	-13	-15	-18

表2から明らかなとおり、比較例のフィルムは、熱劣化による変化が大きく、コンデンサーの絶縁破壊電圧特性低下が大きく、誘電特性が不安定でバラツキが大きく、コンデンサーとして、信頼して使用できる良好なものではなかった。

【0039】

【発明の効果】本発明のポリエチレンテレ-2, 6-フタレートフィルムは、高温度下での機械特性変化が少なく、耐熱性に優れ、コンデンサーとしての絶縁破壊電圧の低下が少なく、誘電特性が安定し信頼性の高いものであり、本発明の工業的価値は高い。